

# Kapitel 4

## Auflösungen von ERDA-Messungen für Chalkopyrit-Absorber

Am Beispiel des Materialsystems von  $\text{Cu}(\text{In,Ga})(\text{S,Se})_2$ , welches in Solarzellen als Chalkopyrit-Absorber verwendet wird, erklärt dieses Kapitel die Berechnung der für ERDA-Messungen relevanten Auflösungen. Besprochen werden in diesem Zusammenhang die maximale Informationstiefe, die Massenselektivität, die Nachweisgrenze atomarer Konzentrationen und die Tiefenauflösung. Aus den Abhängigkeiten der Auflösungen vom experimentellen Aufbau wird im Anschluß über die optimale Wahl der Meßparameter, d.h. der Energien und der Massen der Projektile sowie der Streuwinkel, für das jeweilige Ziel der Untersuchung diskutiert.

Der Schwerpunkt dieses Kapitels liegt bei der Bestimmung der Tiefenauflösung. Aus ihr geht hervor, mit welcher Genauigkeit sich aus der Energie der Ejektile auf die Tiefe der Streuprozesse schließen läßt. Deshalb ist die Kenntnis der Tiefenauflösung für die Simulation der gemessenen Energiespektren der chemischen Elemente und der daraus resultierenden Bestimmung der tiefenabhängigen Konzentrationen dieser Elemente entscheidend.

Die Berechnungen der Auflösungen lassen sich leicht auf andere Materialsysteme übertragen. Je nach Zusammensetzung des zu untersuchenden Materialsystems ergeben sich dabei leichte Änderungen, in diesem Kapitel genannte generelle Trends bleiben aber erhalten.

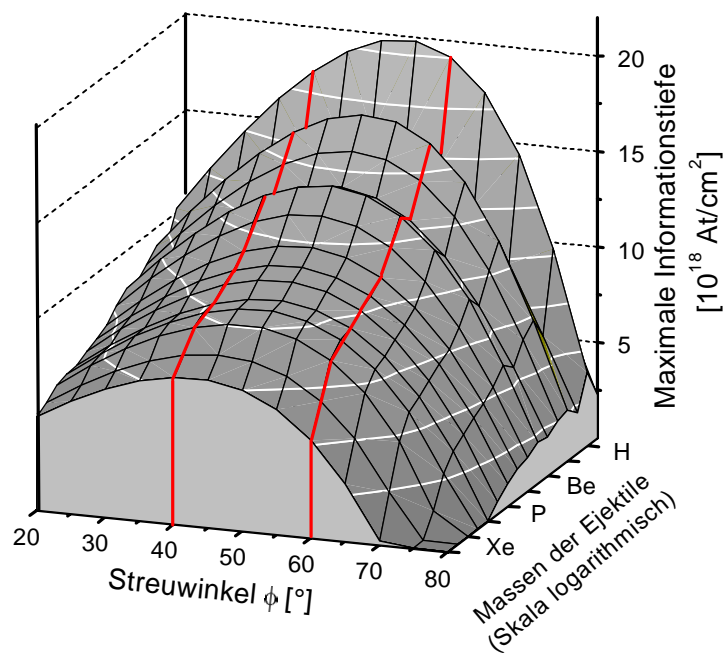
### 4.1 Maximale Informationstiefe

Die maximale Informationstiefe gibt die maximale Streutiefe  $d$  an, aus der Ejektile in Richtung des Detektors zurück an die Oberfläche gelangen und anschließend detektiert werden können. Das Detektionslimit für die Energie der Ejektile wird dabei mit  $100\text{keV/amu}$  angesetzt, da unterhalb dieser Energie die Massenauflösung (Abschnitt 4.2) mit dem in Abschnitt 3.2 beschriebenen Meßaufbau keine Trennung der Ejektile mehr zuläßt.

Mit Formel 3.1 läßt sich die maximale Informationstiefe berechnen. Daraus folgt, daß sie mit der Energie der Projektile  $E_0$  zunimmt. Außerdem ist sie über den

kinematischen Faktor (Formel 3.2) eine Funktion des Streuwinkels ( $\sim \cos^2\phi$ ) und des Massenverhältnisses  $x = M_2/M_1$  von Ejektil zu Projektil. Als weitere Parameter gehen über die Energieverluste  $\Delta E_{in}$  und  $\Delta E_{out}$  das Abbremsvermögen des Projektils und des Ejektils sowie deren Weglängen im Material ein.

Abbildung 4.1 zeigt die maximale Informationstiefe in einer  $\text{Cu(In,Ga)(S,Se)}_2$ -Probe (Cu-25%; In, Ga - 12.5%; S, Se - 25%) bei der Nutzung von  $^{129}\text{Xe}$  Projektilen mit einer Primärenergie  $E_0 = 230\text{MeV}$ . Diese Ionen und diese Energien wurden für die im Rahmen dieser Arbeit gezeigten Messungen (Kapitel 6) am häufigsten verwendet. Für die Berechnungen wurde eine zur Oberflächennormalen der Probe symmetrische Streuung angenommen ( $\alpha = \beta$ ).



**Abb. 4.1:** Maximale Informationstiefe für eine  $\text{Cu(In,Ga)(S,Se)}_2$  Probe bei der Nutzung von  $^{129}\text{Xe}$ -Projektilen mit 230MeV und symmetrischer Streuung ( $\alpha=\beta$ ) sowie einer minimal detektierbaren Ejektilenergie  $E_3 = 100\text{keV}/\text{amu}$  ( $10 \cdot 10^{18} \text{At}/\text{cm}^2 \sim 2.1\mu\text{m}$  Tabelle 6.5) Die roten Linien entsprechen der Nutzung des kurzen ( $\phi = 60^\circ$ ) bzw. des langen ( $\phi = 40^\circ$ ) Flugzeitleteleskopes.

Die maximale Informationstiefe ist in Abbildung 4.1 über dem Streuwinkel  $\phi$  (Abbildung 3.1,  $\alpha + \beta + \phi = 180^\circ$ ) und der Masse der Ejektile aufgetragen. Die Skalierung der Massen erfolgt logarithmisch, um den gesamten Bereich der Massen vom leichtesten chemischen Element - Wasserstoff H - bis zu den schweren Elementen - in diesem Fall bis Americium - darstellen zu können. Anstelle der Massen wurde die Achse mit den Symbolen der entsprechenden chemischen Elemente beschriftet. Bei kleinen Ejektilmassen kommt es bei der Darstellung zu Schwankungen der Werte, da für die Simulation in diesem Bereich Isotope mit einem stark variierendem Verhältnis von Masse zu Kernladungszahl gewählt werden mußten ( $^1\text{H}$ ,  $^2\text{H}$ ,  $^3\text{He}$ ,  $^4\text{He}$ ). Die

maximale Informationstiefe wird in  $10^{18} \text{At/cm}^2$  angegeben, sie läßt sich aber mit Hilfe der in Tabelle 6.5 angegebenen Dichten umrechnen ( $10 \cdot 10^{18} \text{At/cm}^2 \sim 2.1 \mu\text{m}$ ), die für dünne Schichten allerdings abweichen können.

In Abbildung 4.1 erkennt man eine starke Abhängigkeit der maximalen Informationstiefe vom Streuwinkel. Zu kleinen Streuwinkeln nimmt die Informationstiefe aufgrund zunehmender Weglängen der Projektile und Ejektil ab, ebenfalls bei großen Streuwinkeln wegen der Verringerung des Energieübertrages vom Projektil zum Ejektil während des Stoßes (Formel 3.2). Die Abhängigkeit vom Massenverhältnis ist im Vergleich dazu relativ gering.

Die beiden roten Linien bei Streuwinkeln von  $40^\circ$  bzw.  $60^\circ$  entsprechen den im langen bzw. kurzen Flugzeitleteleskop verwendeten Streuwinkeln (Abschnitt 3.2). Für das lange Teleskop ergeben sich somit in  $\text{Cu(In,Ga)(S,Se)}_2$  maximale Informationstiefen zwischen  $16 \cdot 10^{18} \text{At/cm}^2$  für  $^1\text{H}$  ( $\sim 3.4 \mu\text{m}$ ) und  $9.5 \cdot 10^{18} \text{At/cm}^2$  für  $^{129}\text{Xe}$  ( $\sim 2.0 \mu\text{m}$ ).

## 4.2 Massenselektivität

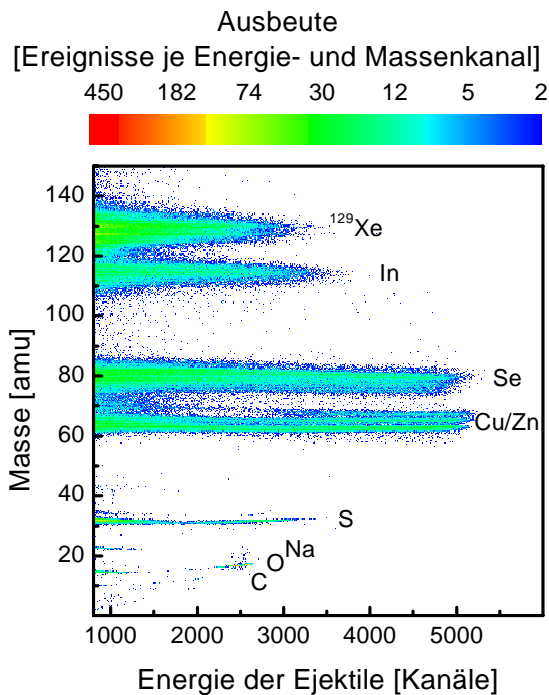
Eine hohe Massenselektivität ist eine notwendige Voraussetzung für ERDA-Messungen, um chemische Elemente ähnlicher Massen voneinander trennen zu können. Zur Unterscheidung der Ejektile verschiedener Massen wird die in Abschnitt 3.2 beschriebene Methode der gleichzeitigen Messung von Flugzeit  $TOF$  und Energie  $E_3$  verwendet. Die Massenauflösung ist daher durch die Auflösungen dieser beiden Meßgrößen gegeben.

In Abbildung 4.2 ist äquivalent zum Scatterplot 3.6 die Ausbeute als Funktion der Energie und der Masse dargestellt. Die Masse wurde dabei aus der Energie und der Flugzeit der Ejektile berechnet. Dies erfolgte auf der Basis einer 2-dimensionalen Eichfunktion  $M(t_{TOF}, E_3)$ , die mittels TableCurve3D [TCu97] erstellt wurde. In einigen Bereichen des Scatterplots kommt es aufgrund der Eichfunktion, die eine Näherung darstellt, noch zu leichten Verbiegungen der im Idealfall horizontalen Massenäste der chemischen Elemente.

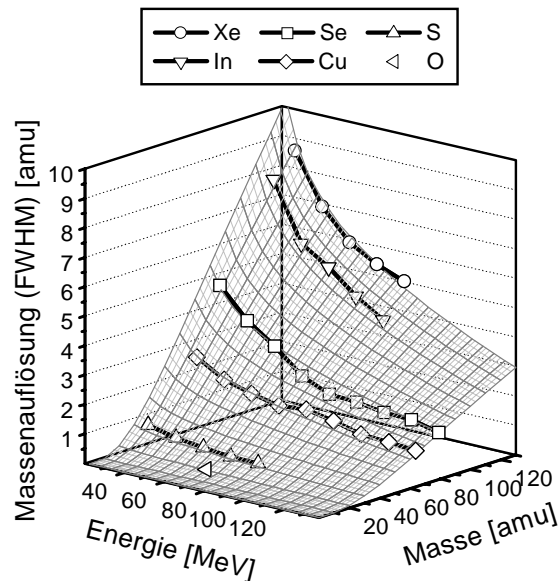
Aus den Breiten der Massenäste wurde unter Berücksichtigung der Isotopenverteilung der chemischen Elemente die Massenauflösung in Abhängigkeit von der Energie der Ejektile bestimmt. Die resultierende Massenauflösung in Abhängigkeit von der Masse und der Ejektilenergie ist für eine ZnSe-Schicht auf einem Chalkopyrit-Absorber in Abbildung 4.3 dargestellt.

Aus den Abbildungen 4.2 und 4.3 erkennt man eine Verringerung der absoluten Massenselektivität mit zunehmender Masse, die relative Massenselektivität bleibt nahezu konstant. So kann man z.B. die Isotope  $^{32}\text{S}$  (95.0%) und  $^{34}\text{S}$  (4.2%) für den gesamten betrachteten Energiebereich gut voneinander unterscheiden, während die Trennung der Isotope  $^{113}\text{In}$  (4.3%) und  $^{115}\text{In}$  (95.7%) nicht einmal an der Oberfläche möglich ist.

Außerdem ist eine Verringerung der Massenauflösung mit sinkender Energie der Ejektile zu erkennen. Diese ist unabhängig von der Auswahl der Projektile und den untersuchten Proben, sondern hängt nur von der Auflösung der Zeit- und der Energiemessung ab. Für das lange Flugzeitleteleskop bildet die Auflösung der Energiemessung die dominierende Begrenzung (Abschnitt 3.2).



**Abb. 4.2:** Scatterplot der Massenverteilung über der Energie für eine Probe aus ZnSe-Schicht und Chalkopyrit-Absorber, gemessen mit  $^{129}\text{Xe}$ -Projektile mit  $E_0 = 230\text{MeV}$  und dem langen Flugzeitleteleskop.



**Abb. 4.3:** Massenauflösung (FWHM-Wert) für das lange Flugzeitleteleskop als Funktion der Energie und der Masse, bestimmt aus den zu Abbildung 4.2 gehörenden Daten.

Chemische Elemente mit ähnlichen Massen lassen sich also eher bei hohen Energien trennen. Die Energien der Ejektile lassen sich durch eine Erhöhung der Primärenergien  $E_0$  der Projektile und eine Erhöhung des kinematischen Faktors  $K$  durch eine Verringerung des Streuwinkels  $\phi$  erreichen. Mit zunehmender Tiefe der Streuprozesse in den Proben verringert sich aber in jedem Fall die Energie der Ejektile und damit die Massenselektivität.

Für die im Rahmen dieser Arbeit untersuchten Proben ist eine gute Massenselektivität insbesondere für die Unterscheidung von Zink, Kupfer, Gallium und Selen entscheidend, die alle im Chalkopyrit-Absorber oder in der ZnSe-Pufferschicht vorkommen.

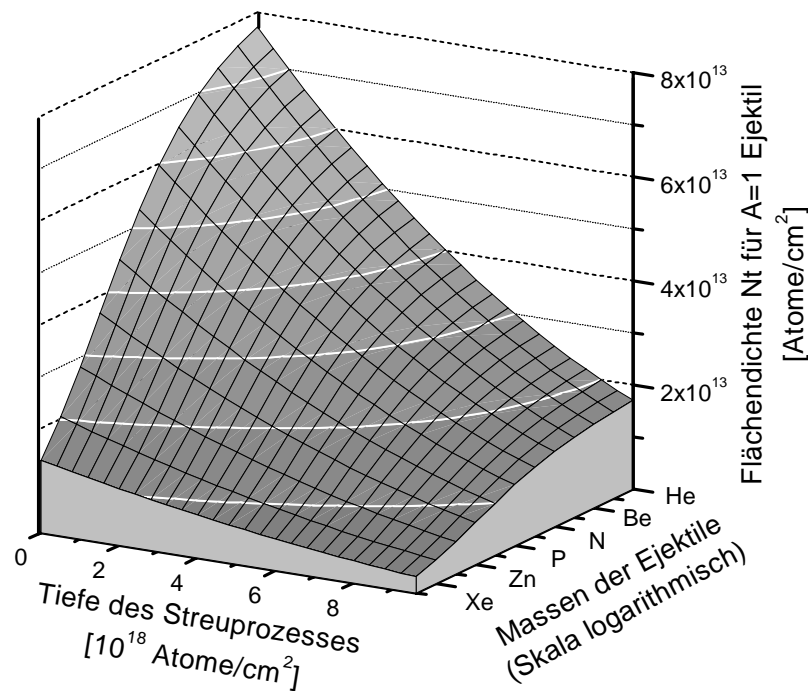
### 4.3 Nachweisgrenze für Konzentrationen

Bei der ERDA-Methode werden die atomaren Konzentrationen der nachgewiesenen Elemente aus der Anzahl der detektierten Ejektile berechnet. Diese Anzahl hängt nach Formel 3.4 aus Abschnitt 3.1.2 neben der Anzahl der Atome in der Probe  $N \cdot t$  ebenso von der Größe des Raumwinkels des Detektors  $\Omega$ , der Anzahl der Projektile  $Q$  sowie vom Streuquerschnitt  $\Sigma_{ERD}$  ab. Für den Nachweis möglichst geringer Konzentrationen benötigt man daher möglichst große Raumwinkel und viele Projektile.

Eine höhere Anzahl von Primärionen läßt sich durch größere Strahlstromdichten und

durch längere Meßzeiten realisieren. Maximal verwendete Strahlströme liegen bei  $^{129}\text{Xe}^{15+}$  mit 230MeV bei 10nA, was einem Teilchenstrom von 0.67TnA (Teilchen-Nanoampere) entspricht (Abschnitt 3.2.2). Die maximal verwendeten Meßzeiten bei diesen Strahlströmen liegen bei ca. 1 Stunde. Daraus ergibt sich eine maximale Projektilzahl von  $Q = 0.67 \cdot 10^{-9}\text{TA}/1.602 \cdot 10^{-19}\text{As} \cdot (1 \cdot 60 \cdot 60)\text{s} = 1.5 \cdot 10^{13}$ .

Für die Untersuchung von  $\text{Cu}(\text{In},\text{Ga})(\text{S},\text{Se})_2$  als Probenmaterial mit den oben angegebenen Projektilen ( $Q = 1.5 \cdot 10^{13}$ ,  $E_0 = 230\text{MeV}$ ;  $M_1 = 128.9\text{amu}$  ( $^{129}\text{Xe}$ )) und dem langen Flugzeitleteoskop mit seinem Raumwinkel von  $\Omega = 1.53\text{msr}$  (Tabelle 3.1) und dem Streuwinkel  $\phi = 40^\circ$ , läßt sich mit den Gleichungen 3.4 und 3.6 die notwendige Flächendichte der Atome  $N \cdot t$  in der Probe berechnen, um im Mittel  $A = 1$  Ejektil detektieren zu können.



**Abb. 4.4:** Notwendige Flächendichte  $N \cdot t$  nach Formel 3.4 zur Detektion von im Mittel einem Ejektil ( $A=1$ ) in einer  $\text{Cu}(\text{In},\text{Ga})(\text{S},\text{Se})_2$ -Probe bei Nutzung von  $Q = 1.5 \cdot 10^{13}$   $^{129}\text{Xe}$ -Projektilen mit  $E_0 = 230\text{MeV}$ , sowie einem Streuwinkel von  $\phi = 40^\circ$  und einem Detektionsraumwinkel  $\Omega = 1.53\text{msr}$

Abbildung 4.4 zeigt die notwendige Flächendichte zur Detektion von im Mittel einem Ejektil in Abhängigkeit von der Tiefe des Streuprozesses und der Masse des zu detektierenden Ejektils. Die Skalen der Streutiefe und der Ejektilmasse wurden äquivalent denen in Abbildung 4.1 erstellt. Je nach Tiefe der Streuung und Masse des Ejektils müssen ca.  $(2 \dots 8) \cdot 10^{13} \text{At/cm}^2$  vorhanden sein. Die erforderliche Anzahl sinkt dabei mit zunehmender Masse. Das gleiche gilt auch für zunehmende Tiefen, d.h. für abnehmende Projektilenergien vor dem Stoß. Beides ist eine Folge einer entsprechenden Änderung des Streuquerschnittes  $\Sigma_{ERD}$ .

Für den statistisch signifikanten Nachweis eines chemischen Elementes benötigt man je

nach Tiefen- und damit Energieverteilung der Ejektile im Scatterplot einige Ejektile. Typische Limits für den Nachweis von Teilchen liegen damit in der Größenordnung von  $10^{14} - 10^{15} \text{ At/cm}^2$ . Dies entspricht ungefähr einer 1/10tel Monolage eines chemischen Elementes oder einer Konzentration von 0.02At% in einer 100nm dicken Schicht.

Wenn zwei chemische Elemente mit einer Differenz in ihren Massen in der Größenordnung der Massenselektivität (Abschnitt 4.2) gleichzeitig untersucht werden sollen, die stark unterschiedliche Konzentrationen aufweisen, kann sich die Nachweisgrenze für das Element mit der geringeren Konzentration verschlechtern. Dies geschieht aufgrund der Tatsache, daß sich die Ausbeuten der beiden Elemente im Scatterplot überlagern und somit schlechter trennbar sind.

### 4.3.1 Zeitliche Stabilität der Proben

Während der Untersuchung von Proben kommt es zu Wechselwirkungen der Ionen mit dem Festkörper. Dabei findet sowohl ein Übertrag von Energie als auch von Ladungen statt. In einigen Fällen kann es dabei zu Veränderungen der Zusammensetzung kommen. Mögliche Formen sind eine Veränderung der Verteilung einer einzelnen Komponente in der Probe, ein Austritt eines chemischen Elementes aus der Probe oder eine teilweise bzw. vollständige Zersetzung der Probe.

Zur Beurteilung der Einflüsse von Ladungs-, Impuls- und Energieüberträgen der Projektilen auf die Probe kann man deren maximale Größe abschätzen. Dies ist an einigen Beispielen in [Str03] ausgeführt. Durch die Speicherung der Meßdaten in der Reihenfolge ihres Auftretens können zeitliche Veränderungen der Probe, d.h. eine Abhängigkeiten der Probe von der Bestrahlung durch die Projektilen, nachgewiesen werden. Dies kann in Form einer Änderung der Anzahl einer Ejektilsorte oder auch der Änderung des Profils der Ejektilspektren als Funktion der Fluenz geschehen, d.h. in Abhängigkeit von der Anzahl der vorher auf die Probe getroffenen Projektilen.

Die Gesamtzahl der in einen beliebigen Winkel herausgeschlagenen Ejektile ist wegen der geringen Streuquerschnitte um viele Größenordnungen kleiner als die Anzahl der einfallenden Projektilen, die im letzten Abschnitt zu maximal einigen  $10^{13}$  Ionen abgeschätzt wurde. Damit ist deren Anzahl im Vergleich zur Zahl der Atome in der Schicht selbst für Schichten mit wenigen Monolagen Dicke vollkommen vernachlässigbar.

Soweit nicht explizit angegeben, zeigte keine der in Kapitel 6 diskutierten Proben von Chalkopyrit-Absorbern, ZnSe-Schichten sowie ZnSe-Einkristallen zeitliche Instabilitäten. Dies wurde auf der Basis der zeitlichen Entwicklung der Energiespektren der chemischen Elemente und zusätzliche Untersuchungen der Oberflächen mit AFM- und Dektak-Messungen (Abschnitt 5.1.1) kontrolliert.

## 4.4 Tiefenauflösung

Die Tiefenauflösung für die chemischen Elemente gibt den Tiefenbereich um die mittlere Eindringtiefe  $d$  an, aus dem Ejektile zur Ausbeute bei der Energie  $E_3(d)$  beitragen (Formel 3.1). Sie läßt sich aus der Gesamtenergieauflösung

$\sigma_{Ges}$  der Ejektile am Detektor bestimmen<sup>1</sup>.  $\sigma_{Ges}$  setzt sich aus den Anteilen der Energieunschärfe der Projektile vor dem Eintritt in die Probe  $\sigma_0$  (Abschnitt 4.4.2), den Energieverluststreuungen des Projektils  $\sigma_{ELS}^P$  und des Ejektils  $\sigma_{ELS}^E$  (Abschnitt 4.4.1), der Detektoraufklösung  $\sigma_{Det}$  (Abschnitt 4.4.3) und den Energieunterschieden der Ejektile wegen der Varianz des kinematischen Faktors  $\sigma_K$  aufgrund der Breite des Detektions- und damit des Streuwinkels zusammen (Abschnitt 4.4.4).

Die Tiefenaufklösung kann berechnet werden, indem man der Gesamtenergieaufklösung  $\sigma_{Ges}$  eine Schichtdicke in der mittleren Tiefe  $d$  des Streuprozesses zuordnet. Der mittlere Energieunterschied von Ejektile, die an der oberen ( $d - 0.5 \cdot \Delta d$ ) bzw. unteren Seite ( $d + 0.5 \cdot \Delta d$ ) der Schicht gestreut werden, entspricht dabei der Energieunschärfe  $\sigma_{Ges}$ . Für dünne Schichten kann Formel 4.1 als gute Näherung angenommen werden, solange die Änderung der Energieverluste für Ejektile mit den Energien  $E_2 + 0.5\sigma_{Ges}$  und  $E_2 - 0.5\sigma_{Ges}$  beim Durchgang durch die Probe vernachlässigt werden kann.

$$\Delta d = \left( \frac{\sigma_{Ges}}{K \cdot S_P(E_1) + S_E(E_2)} \right) / \left( \frac{1}{\cos(\alpha)} + \frac{1}{\cos(\beta)} \right) \quad (4.1)$$

- 
- $\Delta d$  - Tiefenaufklösung
  - $\sigma_{Ges}$  - Gesamtenergieaufklösung der Ejektile am Detektor
  - $K$  - Kinematischer Faktor
  - $E_1/S_P$  - Energie / Abbremsvermögen des Projektils vor dem Streuprozess
  - $E_2/S_E$  - Energie / Abbremsvermögen des Ejektils nach dem Streuprozess
  - $\alpha/\beta$  - Eintritts- / Austrittswinkel der Ionen relativ zur Oberflächennormalen

Der Einfluß der einzelnen Komponenten der Energieaufklösung ( $\sigma_0$ ,  $\sigma_{ELS}^P$ ,  $\sigma_{ELS}^E$ ,  $\sigma_{Det}$ ,  $\sigma_K$ ) auf die Tiefenaufklösung ergibt sich aus den Auswirkungen der entsprechenden Energieaufklösungen auf die Gesamtenergieaufklösung  $\sigma_{Ges}$ . Dies wird in den folgenden vier Abschnitten (4.4.1-4.4.4) am Beispiel einer Chalkopyrit-Probe gezeigt. Eine Zusammenfassung für die Elemente Schwefel, Zink und Indium als Vertreter für die leichten, mittel-schweren bzw. schweren Elemente in der Probe zeigt Abbildung 4.8 auf Seite 63.

#### 4.4.1 Einfluß der Energieverluststreuung

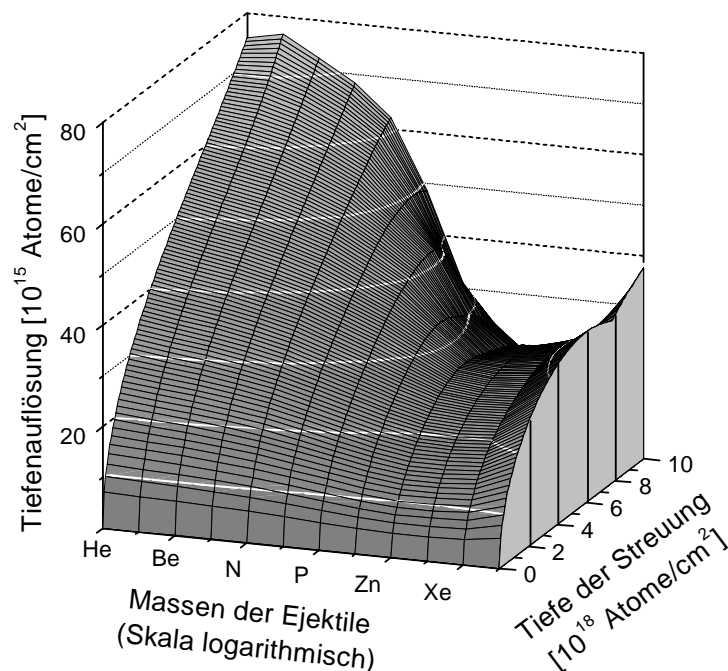
Durch die Energieverluststreuung der Ionen beim Durchgang durch die Probe (siehe Abschnitt 3.1.4) kommt es zu einer tiefenabhängigen Energieaufklösung  $\sigma_{ELS}$ . Diese setzt sich aus den Anteilen vom Projektil  $\sigma_{ELS}^P$ , dessen Einfluß auf  $\sigma_{ELS}$  durch den elastischen Stoßprozess und den Energieverlust des Ejektils mit bestimmt wird, und vom Ejektile  $\sigma_{ELS}^E$  zusammen.

Diese Streuungen treten unabhängig vom ERDA-Detektor immer auf, so daß sich aus  $\sigma_{ELS}$  die maximale erreichbare Tiefenaufklösung bei den gewählten Projektile und Streuwinkeln ergibt.

In der Abbildung 4.5 wird die aus der Energieverluststreuung  $\sigma_{ELS}$  resultierende Tiefenaufklösung für einen Cu(In,Ga)(S,Se)<sub>2</sub>-Absorber bei der Untersuchung mit 230MeV <sup>129</sup>Xe-Projektile bei einem Streuwinkel von 40° und symmetrischer Streuung ( $\alpha = \beta$ ) als Funktion der Streutiefe und der Masse des Ejektils gezeigt.

---

<sup>1</sup>Alle Energieaufklösungen in diesem Kapitel werden als FWHM-Werte betrachtet



**Abb. 4.5:** Aus der Energieverluststreuung resultierende Tiefenauflösung als Funktion der Streutiefe und der Masse des Ejektils für eine  $\text{Cu}(\text{In},\text{Ga})(\text{S},\text{Se})_2$ -Probe ( $100 \cdot 10^{15}$  Atome/cm<sup>2</sup>  $\sim 21\text{nm}$ , Tabelle 6.5)

Mit zunehmender Schichtdicke nimmt die Tiefenauflösung für alle chemischen Elemente in ungefähr gleichem Maße ab. Für leichte bzw. schwere Ejektile im Vergleich zum Projektil kommt es bei größeren Tiefen zu einer etwas stärkeren Verringerung dieser Auflösung. Mit den Dichten für Chalkopyrit-Schichten, die in Tabelle 6.5 angegeben sind, entsprechen  $100 \cdot 10^{15}$  At/cm<sup>2</sup> einer Schichtdicke von ca. 21nm. Somit ergibt sich aus der Energieverluststreuung z.B. für Tiefen von weniger als 200nm eine Tiefenauflösung von unter 7nm.

#### 4.4.2 Energieunschärfe des Projektilstrahls

Die Gesamtbreite der kinetischen Energie  $E_0$  des Projektilstrahls liegt bei den für unsere Messungen typischen Projektilen  $^{129}\text{Xe}$  und Energien  $E_0 = 230\text{MeV}$  bei  $\sigma_0 \leq 250\text{keV}$ . Der daraus resultierende Anteil der Energieunschärfe des Primärstrahles an der Gesamtenergiestreuung  $\sigma_{Ges}$  ist damit außer an der direkten Probenoberfläche verschwindend gering (Abbildung 4.8).

Die Auflösung an der Oberfläche verringert sich auf  $\sim 5 \cdot 10^{15}$  At/cm<sup>2</sup> ( $\sim 1\text{nm}$ ). Der relative Anteil der Energieunschärfe des Primärstrahles an der Gesamtauflösung nimmt mit zunehmender Streutiefe sehr schnell ab. Bereits nach  $100 \cdot 10^{15}$  At/cm<sup>2</sup> ( $\sim 21\text{nm}$ ) sinkt der Anteil unter 40%, nach  $300 \cdot 10^{15}$  At/cm<sup>2</sup> ( $\sim 63\text{nm}$ ) unter 20%.

Wie in den nächsten Abschnitten - 4.4.3-4.4.4 zu sehen ist, wird die Energieauflösung



im oberflächennahen Bereich hauptsächlich von der Auflösung des Flugzeitleteleskopes begrenzt. Deshalb hat die Energieunschärfe der Projektile keinen wesentlichen Einfluß auf die Auflösung der Spektren.

### 4.4.3 Auflösungen der Detektorsysteme

Die Gesamttiefenaufklärung wird auch durch die Energiebestimmung des Detektorsystems des Flugzeitleteleskopes (Abschnitt 3.2.4) mit beeinflusst. Die direkte Bestimmung der Energie mit Hilfe der Halbleiterdetektoren und die indirekte Energieberechnung über die Flugzeiten der Ejektile unterscheiden sich dabei sowohl in ihrer Kalibrierbarkeit als auch in ihrer Energieauflösung.

Die Auflösung der Energiedetektoren (Tabelle 3.1) ist insbesondere für schwere Ionen durch die mit deren Bauart verbundene passive Deckschicht begrenzt. Die Ionen müssen diese durchqueren, bevor sie in den aktiven Meßbereich kommen. Wie in der Probe selbst erleiden sie dabei einen Energieverlust. Dieser Energieverlust variiert wegen lokaler Schichtdickenunterschiede der Deckschicht und der Energieverluststreuung. Daraus ergeben sich relative Energieauflösungen von mehr als 1% , die für schwere Ejektile und mit abnehmender Energie schlechter werden.

Die Energieauflösung  $\sigma_{TOF}$  bei der Energiebestimmung mit Hilfe der Flugzeitmessungen ergibt sich für einzelne Isotope direkt aus der Zeitaufklärung der Messung.

$$\sigma_{TOF} \approx 2E \frac{\Delta t_{TOF}}{t_{TOF}} = \sqrt{\frac{8 \cdot \Delta t_{TOF}^2 \cdot E^3}{M_2 \cdot s^2}}. \quad (4.2)$$

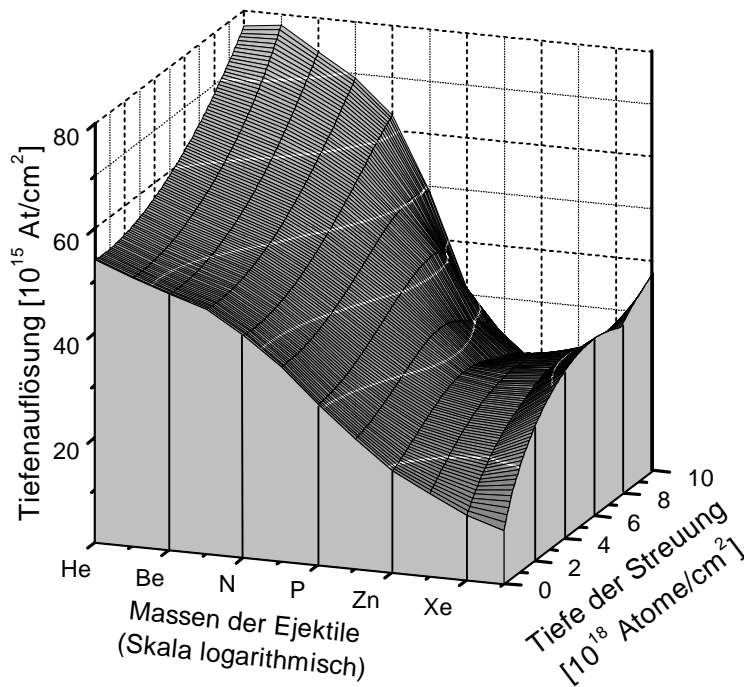
---

$\sigma_{TOF}$	-	aus der Zeitmessung resultierende Energieauflösung des Detektors
$E$	-	aus der Zeitmessung resultierende Energie
$\Delta t_{TOF}$	-	Auflösung der Flugzeit
$t_{TOF}$	-	Flugzeit der Ejektile
$M_2$	-	Masse der Ejektile
$s$	-	Länge der Flugstrecke

Bei Zeitaufklärungen für den langen Flugarm von 150ps und Flugzeiten >50ns bei Längen der Flugwege von  $s = 1.22\text{m}$  (siehe Tabelle 3.1 und Abbildung 3.6) ergeben sich daraus Auflösungen <0.6%, die mit zunehmender Flugzeit, das heißt kleineren Energien  $E_3$  bzw. zunehmender Streutiefe  $d$ , geringer werden.

Bei der Auswertung von ERDA-Messungen werden jedoch selten die Isotope eines chemischen Elementes getrennt und einzelne Isotope ausgewertet. Die Energieauflösung für das Spektrum des chemischen Elementes hängt - wegen der aus den unterschiedlichen Massen resultierenden verschiedenen kinematischen Faktoren  $K$  für die einzelnen Isotope - von der Isotopenverteilung des Elementes selbst ab. Die resultierenden Energieauflösungen sind mit einigen MeV in der Regel etwas schlechter als für ein Isotop. Auf einige Beispiele hierfür geht [Gop93] näher ein.

Äquivalent zu Formel 4.1 errechnet sich die in Abbildung 4.6 dargestellte Tiefenaufklärung des Gesamtsystems unter Berücksichtigung der Zeitaufklärung für eine Chalkopyrit-Probe bei der Verwendung von  $^{129}\text{Xe}$ -Projektile mit einer Primärenergie von 230MeV.



**Abb. 4.6:** Gesamttiefenauflösung aus Energieverluststreuung  $\sigma_{ELS}$ , Energiestreuung der Projektile ( $\sigma_0 = 250\text{keV}$ ) und Flugzeitauflösung ( $\Delta t = 150\text{ps}$ ) bei der Messung einer Chalkopyrit-Probe mit  $230\text{MeV } ^{129}\text{Xe}$ -Projektile.

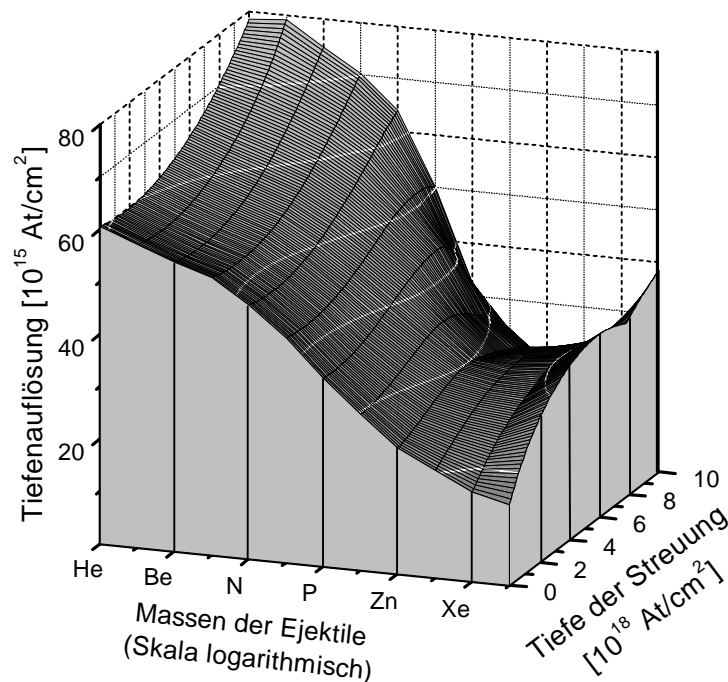
Der Beitrag der Energieauflösung des Detektors ist vor allem in oberflächennahen Bereichen und für leichte Massen dominierend. Dies liegt an den entsprechend kürzeren Flugzeiten der Ejektile bei größeren Energien und der geringeren Energieverluststreuung in oberflächennahen Bereichen. Die Auflösung an der Oberfläche wird dadurch auf  $\leq 50 \cdot 10^{15}\text{At/cm}^2$  ( $\sim 11\text{nm}$ ) für sehr leichte (H,He) und  $\leq 25 \cdot 10^{15}\text{At/cm}^2$  ( $\sim 6\text{nm}$ ) für mittelschwere Ejektile (z.B. Cu, Zn, Se) begrenzt. Für Tiefen  $> 1000 \cdot 10^{15}\text{At/cm}^2$  begrenzt die Energieverluststreuung im Wesentlichen die Gesamttiefenauflösung, für mittelschwere Ejektile (s.o.) bereits ab  $300 \cdot 10^{15}\text{At/cm}^2$ .

#### 4.4.4 Winkelabhängigkeit des kinematischen Faktors

Der Raumwinkel des langen Flugzeitleteleskopes  $\Omega$  ist zur Detektion einer möglichst hohen Anzahl von Ejektile - bezogen auf die Zahl der Projektile - möglichst groß ausgelegt (Tabelle 3.1). Daraus folgen entsprechende Unterschiede des Streuwinkels  $\phi$  der detektierten Ejektile. Da der kinematische Faktor nach Formel 3.2 vom Streuwinkel abhängt ( $\sim \cos^2 \phi$ ), führt dies zu einer Winkelabhängigkeit der detektierten Energien. Zusätzlich ergeben sich mit zunehmender Streutiefe geringfügige Änderungen der Weglängen der Ejektile in Abhängigkeit vom Streuwinkel.

Zur Abschätzung der durch die Winkelabhängigkeit bedingten maximalen

Energieunterschiede lassen sich die tiefenabhängigen Energien der Ejektile für die Winkel  $\phi - 0.5 \cdot \Delta\phi$  und  $\phi + 0.5 \cdot \Delta\phi$  berechnen, wobei  $\Delta\phi$  dem Öffnungswinkel des Detektors in der Streuebene entspricht. Daraus ergibt sich die Energieauflösung  $\sigma_K$ . Die Abbildung 4.7 zeigt die Tiefenauflösung, die aus der Gesamtenergieauflösung  $\sigma_{Ges}$  mit den Anteilen der Energieverluststreuung  $\sigma_{ELS}$ , der Energiestreuung der einfallenden Projektile  $\sigma_0 = 250\text{keV}$ , der Energieauflösung des Detektorsystems  $\sigma_{TOF}$  ( $\Delta t = 150\text{ps}$ ) und der Energieauflösung  $\sigma_K$  ( $\Delta\phi = 0.12^\circ$ ) nach Formel 4.1 berechnet wurde.  $\Delta\phi = 0.12^\circ$  entspricht dabei dem Öffnungswinkel für einen Streifen im Energiedetektor des langen Flugzeitleteleskopes.



**Abb. 4.7:** Gesamttiefenauflösung für Chalkopyrit-Absorber bei der Nutzung von  $230\text{MeV } ^{129}\text{Xe}$ -Projektile und dem langen Flugzeitleteleskop, berechnet aus den Anteilen der Energieverluststreuung  $\sigma_{ELS}$ , der Energiestreuung der einfallenden Projektile  $\sigma_0 = 250\text{keV}$ , der Energieauflösung des Detektorsystems  $\sigma_{TOF}$  ( $\Delta t = 150\text{ps}$ ) und der kinematischen Energieauflösung  $\sigma_K$  ( $\Delta\phi = 0.12^\circ$ ) (entspricht einem Streifen im Energiedetektor)

Der endliche Öffnungswinkel des Detektorsystems beeinflusst die Tiefenauflösung vor allem bei geringeren Streutiefen. In größeren Tiefen dominiert weiterhin die Energieverluststreuung. Bei der Berechnung des Energieauflösung für den gesamten Detektor mit einem Öffnungswinkel von  $\phi = 2.8^\circ$  ohne Berücksichtigung der Streifen kommt man zu einer deutlich schlechteren Energieauflösung.

Um ein Gesamtspektrum aus den Ereignissen aller Streifen des Energiedetektors mit der Auflösung eines Streifens zu erreichen, kann man die Energien der Ereignisse der unter einem Winkel  $\phi + \Delta\Phi$  liegenden Streifen vor der Zusammenfassung der Ereignisse

aller Streifen renormieren. Dabei wird mit Hilfe der Formel 3.2 allen Ereignissen mit ihren Energien  $E_3 + \Delta E(\Delta\Phi)$  die Energien  $E_3$  zugeordnet, die sie bei einem Winkel  $\phi$  gehabt hätten.

Für kleine Streutiefen ist eine Renormierung, welche nur die Änderung des kinematischen Faktors berücksichtigt, eine sehr gute Näherung. Bei größeren Streutiefen muß man jedoch auch die Änderung des Energieverlustes  $\Delta E_{out}$  mit berücksichtigen, der von der Zusammensetzung der Probe selbst abhängt. Dies ist erst nach der Ermittlung der Zusammensetzung der Probe möglich. Eine Renormierung von Ereignissen in diesen Tiefen bringt wegen der Begrenzung der Gesamtauflösung durch die Energieverluststreuung in diesen Streutiefen aber auch keine Vorteile.

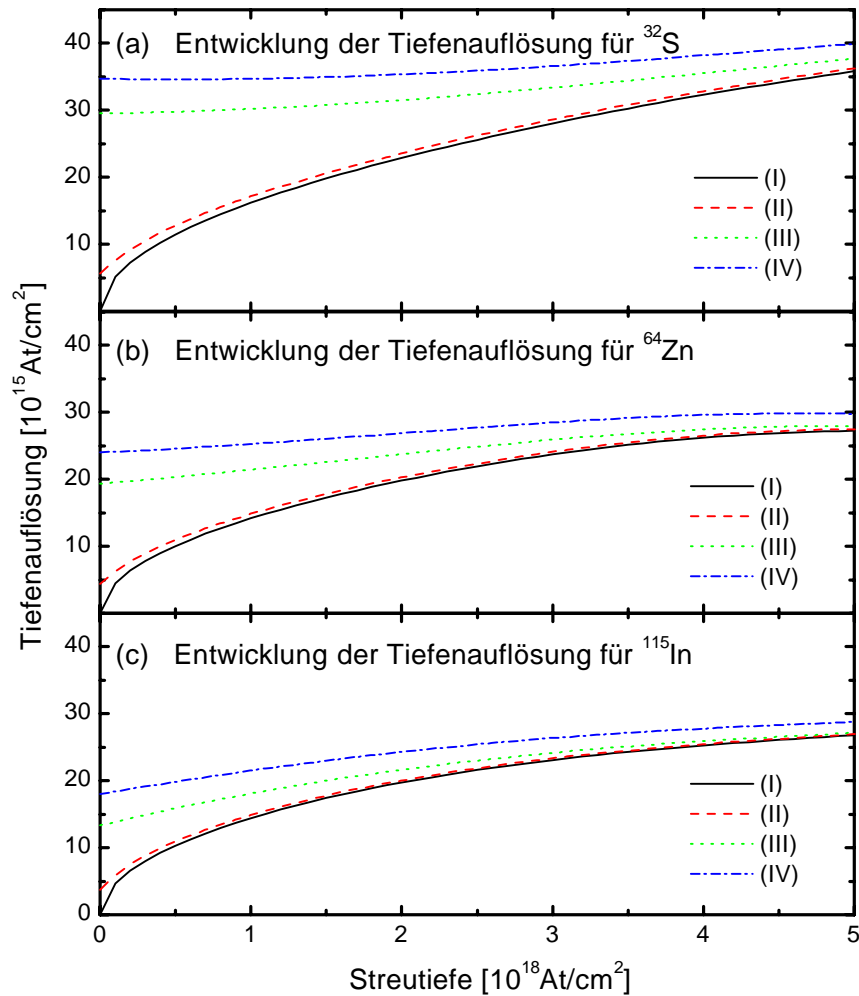
In Abbildung 4.8 ist für die chemischen Elemente Schwefel (S) - als leichtes Element in der Probe, Zink (Zn) - als mittel-schweres Element in der Probe und Indium (In) - als schweres Element in der Probe noch einmal die Entwicklung der Gesamttiefenauflösung  $\sigma_{Ges}$  aus den Beiträgen der einzelnen Energieauflösungen in einer Chalkopyrit-Probe beim Beschuß mit  $^{129}\text{Xe}$ -Projektilen und Streuwinkeln von  $\phi = 40^\circ$  dargestellt. Sie stellen für diese chemischen Elemente einen Vergleich der Abbildungen 4.5 bis 4.7 dar.

## 4.5 Wahl der Betriebsparameter

Aus den Überlegungen der letzten beiden Kapitel ergeben sich für die Wahl der Energie und der Masse der Projektilen sowie des Streuwinkels als freie Parameter einige zu berücksichtigende Einflüsse.

Die Wahl der **Energie der Projektilen** ist durch das Coulomb-Fenster, innerhalb dessen nur elastische Stöße stattfinden, eingegrenzt (Abschnitt 3.1.2). Für die maximale Informationstiefe und die Massenselektivität sind hohe Energien vorteilhaft (Abschnitte 4.1, 4.2). Für die vom Streuquerschnitt abhängige Nachweisgrenze von Konzentrationen sind hingegen geringere Energien besser (Abschnitt 4.3). Die Verschlechterung der Nachweisgrenze läßt sich aber durch eine entsprechend höhere Anzahl von Projektilen kompensieren. Deshalb wird die Energie der Projektilen im oberen Bereich des Coulomb-Fensters bei ca. 2MeV/amu gewählt.

Mit der **Masse der Projektilen** steigt durch die Vergrößerung des Streuquerschnittes die Anzahl der gestreuten Teilchen (Abschnitt 3.1.2). Außerdem erhöht sich der kinematische Faktor für schwere Ejektile und damit deren Energie (Abschnitt 3.1.1). Auch die Massenselektivität und die durch den Coulombwall beschränkte maximale Projektilenergie werden größer (Abschnitte 4.2, 3.1.2). Deshalb werden möglichst schwere Projektilen verwendet, im Rahmen dieser Arbeit sind dies die  $^{129}\text{Xe}$ -Projektilen. Die Auswahl des **Streuwinkels**  $\phi$  wird durch die Beeinflussung der maximalen Informationstiefe eingegrenzt (Abschnitt 4.1). Innerhalb dieses Bereiches ergeben sich aus größeren Streuwinkeln bessere Nachweisgrenzen für minimale Konzentrationen (Abschnitt 4.3). Kleinere Winkel erhöhen hingegen die maximalen Energien  $E_3$  für Streuungen an der Oberfläche und damit die Massenselektivität in oberflächennahen Bereichen. Die Tiefenauflösung, ein entscheidender Faktor für die Untersuchung von tiefenabhängigen Konzentrationsprofilen, ist für das lange Flugzeitleteleskop mit den kleineren Streuwinkeln deutlich höher als für das kurze Flugzeitleteleskop (Abschnitt 4.4.3).



**Abb. 4.8:** Entwicklung der Gesamttiefenauflösung für  $\text{Cu}(\text{In,Ga})(\text{S,Se})_2$ -Absorber aus (I) - dem Anteil der Energieverluststreuung  $\sigma_{\text{ELS}}$  (Abschnitt 4.4.1) (II) - der Energieunschärfe des Projektilstrahls  $\sigma_0 = 250 \text{ keV}$  und dem Anteil der Energieverluststreuung  $\sigma_{\text{ELS}}$  (Abschnitt 4.4.2) (III) - der Zeitauflösung des Detektorsystems  $\Delta t = 150 \text{ ps}$  und den beiden Anteilen aus (II) (Abschnitt 4.4.3) (IV) - der Winkelauflösung des Detektors und den drei Anteilen aus (III) (Abschnitt 4.4.4). (a) - Tiefenauflösung für Schwefel als Beispiel für leichte Elemente im Chalkopyrit-Absorber (b) - Tiefenauflösung für Zink als Beispiel für mittel-schwere Elemente im Chalkopyrit-Absorber (c) - Tiefenauflösung für Indium als Beispiel für schwerere Elemente im Chalkopyrit-Absorber